

A1

**DEMANDE
DE BREVET D'INVENTION**

(21)

N° 83 04681

(54) Compositions adoucissantes concentrées pour tissus à base de dérivés quaternaires d'imidazoline.

(51) Classification internationale (Int. CL³). D 06 L 1/16.

(22) Date de dépôt..... 22 mars 1983.

(33) (32) (31) Priorité revendiquée : US, 22 mars 1982, n° 360,726 et 360,728.

(41) Date de la mise à la disposition du
public de la demande..... B.O.P.I. — « Listes » n° 38 du 23-9-1983.

(71) Déposant : Société dite : COLGATE-PALMOLIVE COMPANY. — US.

(72) Invention de : Marie-Hélène Fraikin, Alan Dillarstone, Marie-Christine Houben et Marc Coutureau.

(73) Titulaire : *Idem* (71)

(74) Mandataire : Cabinet Lavoix,
2, place d'Estienne-d'Orves, 75441 Paris Cedex 09.

La présente invention concerne des compositions d'adoucissants pour tissus, destinées à être utilisées dans le cycle de rinçage d'un procédé de blanchissage, et en particulier des compositions aqueuses concentrées d'adoucissants pour tissus qui présentent des caractéristiques de viscosité stable aux températures ambiantes aussi bien basses qu'élévées, c'est-à-dire que la viscosité de ces compositions n'augmente pas au point de former un gel.

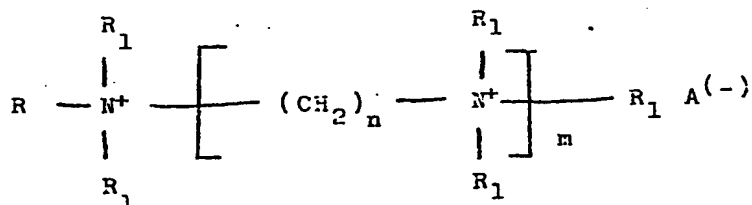
Les compositions contenant des sels d'ammonium quaternaire présentant au moins un groupe hydrocarbyle à longue chaîne sont communément utilisées pour adoucir les tissus lorsqu'on les utilise dans le cycle de rinçage d'une opération de blanchissage; voir par exemple, les brevets des Etats-Unis d'Amérique N° 3 349 033, N° 3 644 203, N° 3 946 115, N° 3 997 453, N° 4 073 735 et N° 4 119 545.

Pour la plupart des compositions aqueuses d'adoucissants contenant des composés cationiques d'ammonium quaternaire comme ingrédients actifs, la concentration de ces composés cationiques a en général été limitée à la plage d'environ 3 à 6% en poids (voir les brevets des Etats-Unis d'Amérique N° 3 904 533 et N° 3 920 565). Cette faible concentration est généralement requise par le fait que les composés cationiques forment des gels dans les systèmes aqueux à des concentrations supérieures à environ 8% et bien que l'utilisation d'électrolytes pour réduire la viscosité de ces compositions soit connue (voir en particulier le brevet des Etats-Unis d'Amérique N° 4 199 545), ces électrolytes sont loin d'être satisfaisants à plusieurs points de vue.

D'une part, d'un point de vue économique, l'utilisation de tels électrolytes contribue au prix du produit et ceci est généralement indésirable. Du point de vue fonctionnel, les électrolytes ne se comportent souvent pas comme on le désire, en particulier à des concentrations en composés cationiques voisines d'environ 12 à 15%. Et enfin, bien que le comportement

des électrolytes puisse atténuer la plus grande partie du problème de la gélification, leur utilisation est loin d'être satisfaisante pour obtenir un système aqueux fortement concentré de composés cationiques, qui ne se gélifie pas ou dont la viscosité ne se modifie pas dans la plage usuelle de températures rencontrées dans sa manipulation, par exemple environ -18° à environ 60°C). Le brevet des Etats-Unis d'Amérique n° 3 681 241 décrit une émulsion adoucissante concentrée pour tissus qui consiste essentiellement en 3,5 à 6,5 parties en poids d'un composé représenté par exemple par le chlorure de distéaryldiméthyl-ammonium, 3,5 à 6,5 parties en poids d'un alkylsulfate d'alkyl-amido-imidazolinium et 0 à 3 parties en poids d'un alkylsulfate d'amido-imidazolinium gras, différent mais analogue, ce dernier étant supposé fournir une stabilité à basse température à la composition. Les composés actifs totaux envisagés se situent dans la plage d'environ 8 à 13%.

Le brevet des Etats-Unis d'Amérique N° 4 155 855 décrit des adoucissants liquides concentrés pour tissus contenant (1) un agent substantif pour tissus qui peut être une polyamine, un sel d'alkylpyridinium, ou un mélange des deux et (2) un adoucissant pour tissu dans lequel les polyamines ont la formule :

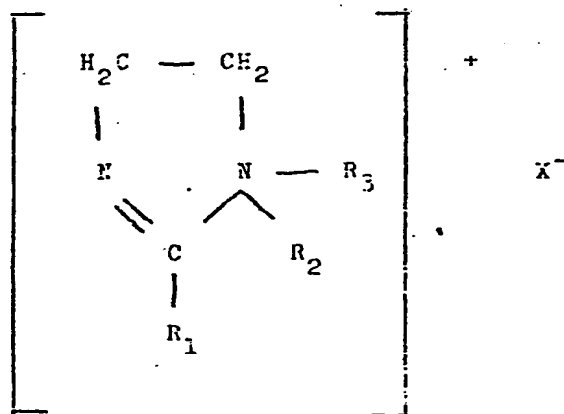


dans laquelle R est un groupe alkyle ou alcényle en C_{10} à C_{24} ou $R-O-(CH_2)_n-$; R_1 peut être de l'hydrogène, des groupes hydroxy-alkoxy, alkyle en C_1 à C_3 , etc. ; n a une valeur de 2 à 6 et m a une valeur de 1 à 5 et $A^{(-)}$ représente un ou plusieurs anions équilibrant la charge. Parmi les adoucissants pour tissus, on peut citer des sels d'alkyl-imidazolinium généralement analogues aux sels d'imidazolinium utilisés dans les compositions de la présente invention. La composition contient 25% à environ 55% d'un système actif d'agent substantif pour tissus et un composant adoucissant pour tissus le premier représentant 25 à environ 85% et le second 15 à environ 75% de la composition. Selon des aspects préférés, le composant substantif pour tissus représente 50 à 85%, et de préférence 65% à 80%, et l'adoucissant 15 à 50%, et de préférence 20 à 35%. Dans tous les cas, la concentration la plus faible du composant substantif pour tissus par rapport à la somme de celui-ci et de l'adoucissant est donnée (en termes de pourcentage) comme étant de 25%, mais sur la base des rapports des deux agents (6:1 à 1:4); ce pourcentage pouvait d'une façon concevable être aussi faible que 20%.

La présente invention fournit des compositions d'adoucissant aqueuses concentrées stables aux températures basses et élevées basées sur des composés adoucissants du type imidazolinium et une quantité secondaire d'un composé d'ammonium quaternaire dicationique ou classique qui, en soi, n'est pas un adoucissant. La présente invention fournit également un procédé permettant de produire des compositions d'adoucissant pour tissus fortement concentrées.

Les compositions de la présente invention sont des compositions aqueuses stables qui contiennent une forte concentration de l'adoucissant cationique pour tissus qui est un mélange de deux types différents de composés d'ammonium quaternaire comme décrit ci-après.

Les compositions aqueuses de la présente invention contiennent au moins environ 8% et jusqu'à environ 25% d'adoucissant cationique, et de préférence environ 9 à 15% de cet adoucissant, cet adoucissant cationique comprenant un mélange d'un adoucissant du type imidazolinium généralement de formule (A)



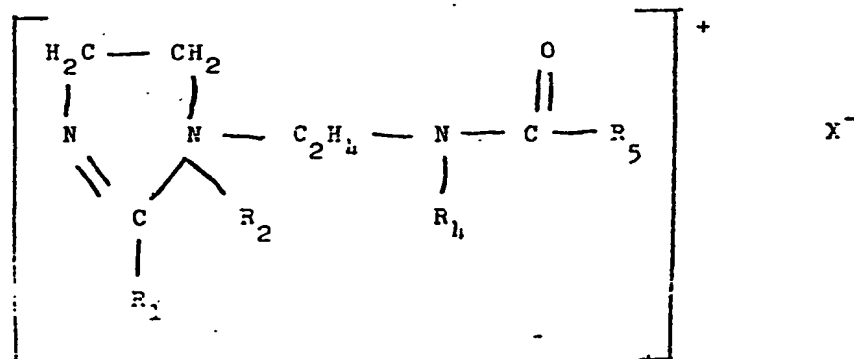
dans laquelle :

R_1 est un radical aliphatique en C_8 à C_{30} et de préférence un radical alkyle ou alcényle en C_{14} à C_{18} ;

R_2 et R_3 peuvent avoir indépendamment l'un de l'autre la définition de R_1 ou, de préférence, ils représentent un groupe alkyle inférieur ou alkyle substitué en C_1 à C_4 , par exemple halogénoalkyle, hydroxyalkyle, acylaminoalkyle, etc.;

X est un anion de solubilisation dans l'eau tel que chlorure, bromure, iodure, fluorure, sulfate, méthosulfate, nitrite, nitrate, phosphate, et carboxylate (par exemple acétate, adipate, phtalate, benzoate, oléate, etc.);

Les composés préférés répondant à la formule (AA)



dans laquelle

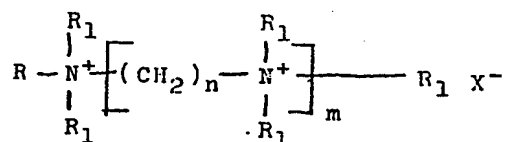
R_1 est tel que défini dans la formule (A);

R_2 peut avoir n'importe quelle définition de R_1 ou de préférence représente un groupe alkyle inférieur ou alkyle substitué en C_1 à C_4 , tel que halogénoalkyle, hydroxyalkyle, etc.;

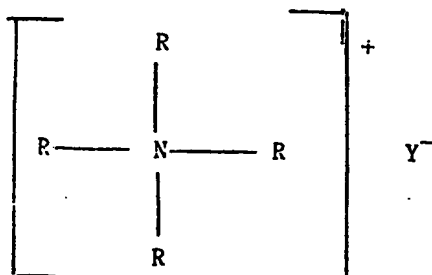
R_4 peut être l'hydrogène ou un groupe alkyle ou alkyle substitué en C_1 à C_4 ;

R_5 peut avoir n'importe quelle définition de R_1 et R_2 , de préférence un radical aliphatique en C_8 à C_{30} et mieux encore alkyle ou alcényle en C_{14} à C_{18} ; et

X est tel que défini dans la formule (A) et d'un composé d'ammonium quaternaire dicationique de formule générale (B)



dans laquelle le groupe R est choisi parmi des radicaux aliphatiques en C_{10} à C_{30} , de préférence alkyle ou alcényle; ou $RO-(CH_2)_n-$ où R a la même signification que ci-dessus, c'est-à-dire des radicaux aliphatiques en C_{10} à C_{30} , et de préférence alkyle ou alcényle; les symboles R_1 peuvent représenter l'hydrogène; des groupes alkyle ou hydroxyalkoxy en C_1 à C_4 ; n est un nombre entier de 2 à 6 et m est un nombre entier de 1 à 5; et X a la définition donnée dans la formule (A), les composés préférés étant ceux dans lesquels R est en C_{12} à C_{18} et R_1 est un groupe alkyle inférieur, en particulier méthyle; ou un composé d'ammonium quaternaire classique de formule générale (C)



dans laquelle les groupes R sont choisis parmi les radicaux aliphatiques en C_1 à C_{30} , de préférence alkyle ou alcényle, aryle (par exemple phényle, toyle, cumyle, etc.); aralkyle (par exemple benzyle, phénéthyle, etc.); et leurs substituants halogéno, amide, hydroxy et carboxy; sous réserve qu'au moins un symbole R soit en C_{14} à C_{30} , de préférence en C_{14} à C_{18} , et que les autres soient des groupes alkyle inférieur, et mieux encore qu'au moins deux des symboles R soient en C_{14} à C_{18} et que les autres soient des groupes alkyle inférieur en C_1 à C_4 (et en particulier méthyle ou éthyle) et Y est un anion comme défini pour X dans la formule (A).

La concentration du composé d'imidazolinium (A) peut se situer entre 8 et 20% en poids par rapport à la composition totale et celle du composé dicationique (B) ou du composé classique (C) peut se situer entre environ 0,5 à 5% en poids de la composition totale, le rapport de A à B (ou C) se situant entre environ 40:1 et environ 3:1, de préférence entre 40:1 et 5:1, et mieux encore pour (B) entre 15:1 et 7:1.

Des exemples d'adouçissants du type imidazolinium comprennent les suivants dans le cadre de la formule (A) ci-dessus:

Ethosulfate de 2-heptadécyl-1-méthyl-1-oléylamidoéthyl-imidazolinium,
Sulfate de 2-heptadécyl-1-méthyl-1-(2-stéaroylamido)éthyl-imidazolinium,
chlorure de 2-heptadécyl-1-méthyl-1-(2-stéaroylamido)éthyl-imidazolinium,
chlorure de 2-coprah-1-(2-hydroxyéthyl)-1-benzyl-imidazolinium,
chlorure de 2-coprah-1-(hydroxyéthyl)-1-(4-chlorobutyl)-imidazolinium,
chlorure de 2-coprah-1-(2-hydroxyéthyl)-1-octadécényl imidazolinium,

- chlorure de 2-tall oil-1-(2-hydroxyéthyl)-1-benzyl-
imidazolinium gras,
chlorure de 2-tall oil-1-(2-hydroxyéthyl)-1-(4-chlo-
robutyl)-imidazolinium gras,
5 chlorure de 2-heptadécényl-1-(2-hydroxyéthyl)-1-
(4-chlorobutyl)-imidazolinium,
chlorure de 2-heptadécényl-1-(2-hydroxyéthyl)-1-
benzyl-imidazolinium,
10 Ethylsulfate de 2-heptadécyl-1-(hydroxyéthyl)-1-
octadécyl-imidazolinium.

Des exemples de composés dicationiques de Formule

(B) comprennent les suivants :

- Diméthosulfate de N-(dérivé de Suif)-N,N,N¹, N¹-tetra
methyl-1,3-propanediammonium
15 diméthosulfate de N-(dérivé de Suif)-N,N¹, N¹-trimé-
thyl-1,3-propanediammonium
diméthosulfate de N-Oléyl-N,N,N¹,N¹-pentaméthyl-1,3-
propanediammonium
20 diméthosulfate de N-(dérivé de Suif)-N,N,N¹,N¹,N¹-pen-
taméthyl-1,3-propanediammonium
diméthosulfate de N-stéaryl-N,N, N¹,N¹,N¹-pentaméthyl-
1-3-propanediammonium
diacétate de N-stéaryloxypropyl-N,N¹,N¹tris(3-hydroxy-
propyl)-1,3-propane-diammonium
25

Des exemples de composés cationiques de formule (C)
comprennent les suivants :

- chlorure de distéaryl-diméthyl-ammonium
chlorure de disuif-diméthyl ammonium
chlorure de dihexadécyl-diméthyl-ammonium
30 bromure de distéaryl-diméthyl-ammonium
bromure de(disuif hydrogéné)diméthyl-ammonium
chlorure de distéaryl-di(isopropyl) ammonium
méthosulfate de distéaryl-diméthyl-ammonium

En plus des composants cationiques de la présente invention, on peut également incorporer dans les compositions aqueuses de nombreuses autres matières classiques ou composants facultatifs qui n'affectent pas défavorablement la stabilité et/ou les caractéristiques fonctionnelles de la présente invention. Ainsi, par exemple, on peut incorporer des quantités secondaires de divers surfactifs et en particulier certains esters phosphoriques surfactifs qui peuvent avoir comme effet avantageux de combattre l'électricité statique des articles lavés. Ces composants supplémentaires classiques comprennent également des parfums, des colorants, des pigments, des germicides, des agents d'avivage optique, des agents anti-corrosion (silicate de sodium), etc. Lorsqu'on les utilise, chacun d'eux peut constituer par exemple 1% en poids des compositions de l'invention.

Il peut également être avantageux de renforcer et/ou de modifier les caractéristiques de viscosité de la composition de la présente invention par l'addition d'un électrolyte tel que le chlorure de calcium, le nitrate de sodium, le formiate de sodium, etc., en des proportions comprises entre environ 0,05 et environ 5% en poids. Des proportions secondaires (par exemple 0,5 à 10%) d'autres composants peuvent également être incorporés, par exemple les alcanols inférieurs, par exemple l'alcool éthylique et isopropylique ainsi que les opacifiants classiques, en particulier des types d'émulsion de résine qui sont bien connus dans la technique.

Les exemples suivants illustrent l'invention sans la limiter. Les parties sont exprimées en poids sauf indication contraire.

EXEMPLE 1

On prépare la composition suivante :

	<u>% en poids</u>
Eau désionisée	73,05
5 Méthosulfate de 1-méthyl-1-sulf- amidoéthyl-2-sulf-imidazolinium	15,00
Diméthosulfate de N-(dérivé de sulf)- N,N,N ¹ ,N ¹ ,N ¹ -pentaméthyl-1,3-propane- diammonium	2,00
10 Colorant et parfum, complément à 100%	

Cette composition a une viscosité d'environ 240 mPa.s immédiatement après la préparation, qui augmente jusqu'à un peu moins de 400 mPa.s après six semaines de vieillissement à la température ambiante et à environ 840 mPa.s après un vieillissement de six semaines à 43°C. A ces valeurs, la viscosité du produit est tout à fait dans la gamme acceptable de viscosités qui varie d'environ 100 à environ 1000 mPa.s, et de préférence d'environ 200 à environ 800 mPa.s. En l'absence du composé dicationique dans la composition et en présence de NaCl à 0,1%, on constate que la viscosité est initialement d'environ 324 mPa.s, de 1700 mPa.s après un vieillissement de six semaines à la température ambiante et de 2300 mPa.s après un vieillissement de six semaines à 43°C.

EXEMPLE 2

25 On ajoute à 80 parties d'eau désionisée 0,05 partie de formiate de sodium, puis 15 parties de méthosulfate de 1-méthyl-1-stéaryl-amidoéthyl-2-stéaryl-imidazolinium et 2,0 parties du composé dicationique de l'Exemple 1. On ajoute ensuite 0,05 partie de chlorure de calcium. On obtient un
30 produit très satisfaisant à partir des composants ci-dessus ainsi que de la séquence opérationnelle de mélange des composants.

EXEMPLE 3a-f

On répète chacun des Exemples 1 et 2 si ce n'est qu'on remplace le composé dicationique (2,0% en poids), par les composés suivants :

		<u>% en poids</u>
5	(a) Composé dicationique de l'Exemple 1	3,0
	(b) Composé dicationique de l'Exemple 1	1,0
10	(c) Diméthosulfate de N-(dérivé de suif)- N,N,N ¹ ,N ¹ -tétraméthyl-1,3-propane- diammonium	2,5
	(d) Diméthosulfate de N-oléyl-N,N,N ¹ ,N ¹ ,N ¹ - pentaméthyl-1,3-propanediammonium	1,5
15	(e) Diméthosulfate de N-(dérivé de suif)- N,N ¹ ,N ¹ -triméthyl-1,4-butanediammonium	2,0
	(f) Diacétate de N-stéaryloxypropyl-N,N ¹ ,N ¹ - tris(3-hydroxypropyl)-1,3-propanediammonium	2,0

EXEMPLE 4a-f

On répète chacun des Exemples 1, 2 et 3a à 3f si ce n'est que l'adouçissant cationique du type imidazolinium est remplacé par les composés suivants :

		<u>% en poids</u>
25	(a) Méthosulfate de 2-heptadécyl-1-méthyl- 1-oléylamidoéthyl-imidazolinium	12,0
	(b) Méthosulfate de 2-heptadécyl-1-méthyl- 1-oléylamidoéthyl-imidazolinium	14,0
	(c) Méthosulfate de 2-heptadécényl-1-méthyl- 1-oléylamidoéthyl-imidazolinium	16,0
30	(d) Chlorure de 2-heptadécényl-1-(2-hydroxyé- thyl)-1-benzyl-imidazolinium	12,0
	(e) Chlorure de 2-heptadécényl-1-(2-hydroxyé- thyl)-1-benzyl-imidazolinium	15,0
	(f) Chlorure de 2-heptadécényl-1-(2-hydroxyé- thyl)-1-benzyl-imidazolinium	10,5

EXEMPLE 5

On prépare la composition suivante :

		<u>% en poids</u>
	Eau désionisée	78,90
5	NaCl (solution aqueuse à 10%)	1,50
	Méthosulfate de 1-méthyl-1-suif-amidoéthyl- 2-suif-imidazolinium	12,0
	Chlorure de distéaryl-diméthyl-ammonium	1,5
	Couleur et parfum, quantité suffisante pour 100%.	
10	Cette composition a une viscosité d'environ 79 mPa.s immédiatement après la préparation, cette viscosité augmentant à un peu moins de 400 mPa.s au bout de six semaines de vieillissement à 43°C. A une viscosité d'environ 400 mPa.s, le produit se trouve tout à fait dans la plage acceptable de	
15	viscosités, qui varie entre environ 100 et environ 1000 mPa.s et, de préférence, entre environ 200 et environ 800 mPa.s. En l'absence de l'adouccissant diméthyl-distéaryl-cationique, la composition, après vieillissement, a une viscosité d'environ 1500 à 2000 mPa.s.	

20 EXEMPLE 6

On répète l'Exemple 5 si ce n'est qu'en plus du chlorure de sodium (0,15%), on ajoute également du chlorure de calcium (0,15%), du formiate de sodium (0,15%) et du nitrate de sodium (0,15%).

25 EXEMPLE 7

On prépare une composition analogue à celle de l'Exemple 5, si ce n'est que l'adouccissant est uniquement constitué de 13,5% de chlorure de distéaryl-diméthyl-ammonium. On obtient ainsi un gel très ferme qui n'est pas du tout commercialisable.

EXEMPLE 8

On ajoute à 80 parties d'eau désionisée, 0,04 partie de formiate de sodium, puis 12 parties de méthosulfate de 1-méthyl-1-stéaryl-amidoéthyl-2-stéaryl-imidazolinium et 1,5 partie de chlorure de di(suif hydrogéné) diméthylammonium. On ajoute ensuite 0,04 partie de chlorure de calcium. On obtient un produit très satisfaisant à partir des composants ci-dessus ainsi que de la séquence opérationnelle de mélange des composants.

EXEMPLE 9a-f

On répète chacun des Exemples 5, 6 et 8, si ce n'est qu'à la place du chlorure de distéaryl-diméthyl-ammonium (1,5% en poids), on utilise les ingrédients suivants :

	<u>% en poids</u>
(a) chlorure de di(suif)-diméthyl-ammonium	2
(b) chlorure de di(suif) diméthyl-ammonium	3
(c) méthosulfate de di (suif hydrogéné) diméthyl-ammonium	1,5
(d) méthosulfate de di (suif hydrogéné) diméthyl-ammonium	2,5
(e) méthosulfate de di (suif hydrogéné) diméthyl-ammonium	3,5
(f) acétate de di-oléyl-diéthyl-ammonium	1,5

EXEMPLES 10a-f

On répète chacun des Exemples 5, 6 et 9a à 9f si ce n'est qu'à la place du composé d'imidazolinium (12% en poids) de ces exemples, on utilise les composés suivants :

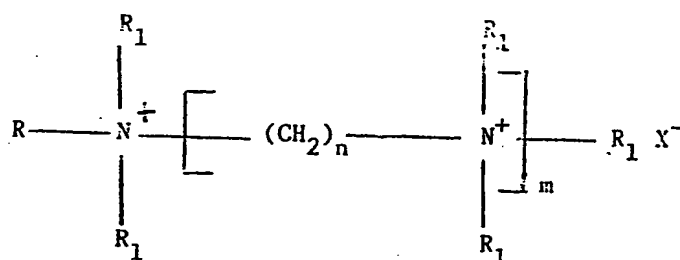
	<u>% en poids</u>
(a) méthosulfate de 2-heptadécyl-1-méthyl-1-oléylamidoéthyl-imidazolinium	12,0
(b) méthosulfate de 2-heptadécyl-1-méthyl-1-oléylamidoéthyl-imidazolinium	14,0
(c) méthosulfate de 2-heptadécyl-1-méthyl-1-oléylamidoéthyl-imidazolinium	16,0

		<u>% en poids</u>
	(d) chlorure de 2-heptadécényl-1-(2-hydroxyéthyl)-1-benzyl-imidazolinium	12,0
	(e) chlorure de 2-heptadécényl-1-(2-hydroxyéthyl)-1-benzyl-imidazolinium	15,0
5	(f) chlorure de 2-heptadécényl-1-(2-hydroxyéthyl)-1-benzyl-imidazolinium	10,5

RE V E N D I C A T I O N S

1. Composition adoucissante concentrée, aqueuse, stable, pour tissus, caractérisée en ce qu'elle contient environ

- (A) 8 à 20% en poids d'un adoucissant du type imidazolinium,
 (B) 0,5 à 5% en poids de (i) un composé de formule :



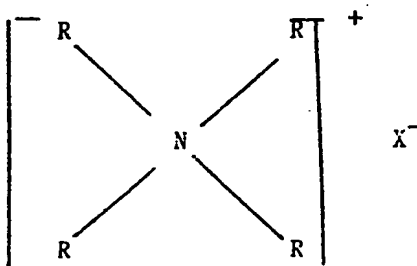
dans laquelle R est un radical aliphatique en C_{10} à C_{30} ;

les symboles R_1 représentent indépendamment les uns des autres de l'hydrogène ou un groupe alkyle ou hydroxyalkoxy en C_1 à C_4 ;

n est un nombre entier de 2 à 6 ;

m est un nombre entier de 1 à 5; et

x est un anion de solubilisation dans l'eau ou (ii) un composé de formule :



dans laquelle les groupes R sont des radicaux aliphatiques en C₁ à C₃₀, l'un au moins étant un groupe alkyle en C₁₄ à C₃₀, le rapport pondéral de (A) à (B) étant compris entre environ 40:1 et environ 3:1.

5 2. Composition selon la revendication 1, caractérisée en ce qu'elle contient jusqu'à environ 5% en poids d'électrolyte.

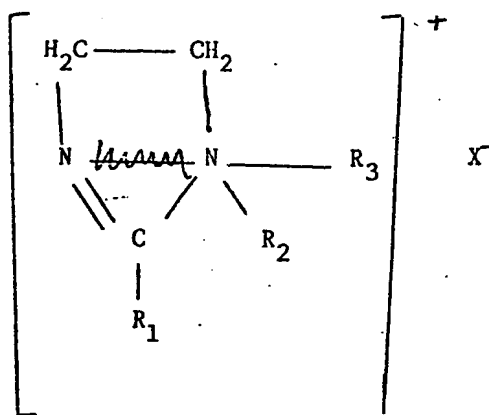
10 3. Composition selon la revendication 1, caractérisée en ce que l'adoucissant du type imidazolinium est un sel de 1-heptadécyl-1-méthyl-(2-stéaroyl-amidoéthyl)imidazolinium.

4. Composition selon la revendication 3, caractérisée en ce que le composé dicationique est le diméthosulfate de N-(dérivé de suif)- N,N,N¹,N¹,N¹-pentaméthyl-1,3-propanediamonium.

15 5. Composition selon la revendication 4, caractérisée en ce que la quantité de composé A est d'environ 15% et celle du composé B est d'environ 2%.

20 6. Composition selon la revendication 1, caractérisée en ce que A et B sont les seuls adoucissants pour tissus présents dans la composition.

7. Composition selon la revendication 1, caractérisée en ce que l'adoucissant du type imidazolinium (A) répond à la formule



dans laquelle :

R_1 est un radical aliphatique en C_8 à C_{30} et de préférence un radical alkyle ou alcényle en C_{14} à C_{18} ;

R_2 et R_3 peuvent avoir indépendamment l'un de l'autre une signification quelconque de R_1 ou de préférence un groupe alkyle inférieur ou alkyle substitué en C_1 à C_4 ; et

X est un anion de solubilisation dans l'eau tel que chlorure, bromure, iodure, fluorure, sulfate, méthosulfate, nitrite, nitrate, phosphate et carboxylate.

8. Composition selon la revendication 3, caractérisée en ce que l'adoucissant cationique (B) est le chlorure de distéaryl-diméthyl-ammonium.

9. Composition selon la revendication 8, caractérisée en ce que le rapport de (A) à (B) est d'environ 15:1 à 5:1.

10. Composition selon la revendication 9, caractérisée en ce que la quantité de composé (A) est d'environ 12% et celle de (B) est d'environ 1,5%.

11. Composition selon la revendication 9, caractérisée en ce que la concentration totale en adoucissant est d'environ 10 à 15% en poids.

12. Procédé de préparation d'une composition selon la revendication 2, caractérisée en ce qu'il consiste tout d'abord à préparer une solution aqueuse d'au moins une partie de l'électrolyte, puis à ajouter successivement les composants adoucissants (A) et (B), puis le reste de l'électrolyte de manière à obtenir une composition stable.

THIS PAGE BLANK (USPTO)